

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

95. >ELECTRODE< >CATALYST< AND PREPARATION THEREOF - PAJ 00-06-76

59225740 JP NON- 075-0273-7716-2

INVENTOR(S)- OE. KAZUhide; TABUCHI, KATSUHIKO

PATENT APPLICATION NUMBER- 58099840 DATE FILED- 1983-06-04

PUBLICATION NUMBER- 59225740 JP DOCUMENT TYPE- A

PUBLICATION DATE-

1984-12-18 INTERNATIONAL PATENT CLASS- B01J02346; B01J03702;

H01M00492 APPLICANT(S)- TDK CORP PUBLICATION COUNTRY-

Japan

PURPOSE: To obtain an >electrode< >catalyst< high in electrooxidizing catalytic activity of methanol and having good durability, by constituting the coating layer formed on a conductive >substrate< from a platinum-ir-oxide composition containing ir-oxide in specific content. CONSTITUTION: A coating liquid containing a compound converted to a platinum metal by thermal decomposition (e.g., chloroplatinic acid) and a compound converted to ir-oxide by heating (e.g., ir-chloride) is applied to a conductive >substrate< and, after drying, the coated >substrate< is subjected to heat >treatment< in an oxygen-containing atmosphere to form a coating layer comprising a platinum-ir-oxide composition containing 15W60mol% of ir oxide. Thus obtained >electrode< >catalyst< has methanol electrooxidizing catalytic activity sufficiently satisfiable from a practical standpoint and is suitable for one for methanol electrolysis wherein the lowering in catalytic activity is extremely reduced in electrolysis over a long time and life sufficiently satisfiable from a practical standpoint is imparted.

COPYRIGHT: (C)1984,JPO&Japio

L3 ANSWER 1 OF 1 CAPLUS COPYRIGHT 1998 ACS

1985:135092 Document No. 102:135092 Catalyst anode for an aqueous methanol battery. (TDK Corp., Japan). Jpn. Kokai Tokkyo Koho ---JP 59225740 A2--- 8-1218 Showa, S pp. (Japanese). CODEN: JKXXAF. APPLICATION: JP 83-99840 830604.

AB An elec. conductive substrate is coated with Pt contg. 20-55 mol% IrO₂ and is used as the anode in an aq. MeOH (67-56-1) battery and for Zn smelting in aq. H₂SO₄-ZnSO₄. Thus, H₂PtCl₆.6H₂O and H₂IrCl₆.6H₂O were dissolved in BuOH to contain metals 0.1 g/mL in a 70:30 molar ratio, painted over 2-mm diam. Ti wire (degreased with Tri-Clene and heated in boiling 10% H₂C₂O₄ for 5 h), dried, and calcined at 500.degree. for 10 min 10 times to be coated in 2-.mu. thickness. It was coated with Teflon to expose a definite area, immersed along with a Pt cathode in aq. 1M H₂SO₄-1M MeOH at 50.degree., and injected with N₂, and the soln. was connected by a bridge to 1M H₂SO₄ at 25.degree. immersed with a normal H electrode (NHE). The max. c.d. was .apprx.1.3 A/cm² when scanned at 0.1 V/s.

MeOH oxidn. peak c.d. was .apprx.130 mA/cm² (max. .apprx.150 at 40 mol% IrO₂), and c.d. at 0.6 V vs. NHE decreased slightly after 5000 h.

⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑩ 特許出願公開

⑪ 公開特許公報 (A)

昭59-225740

⑫ Int. Cl.³
B 01 J 23/46
37/02
H 01 M 4/92

識別記号

庁内整理番号
7624-4G
7624-4G
7268-5H

⑬ 公開 昭和59年(1984)12月18日

発明の数 2
審査請求 未請求

(全 8 頁)

⑭ 電極触媒およびその製造方法

⑮ 発明者 田淵克彦

東京都中央区日本橋一丁目13番
1号ティーディーケイ株式会社
内

⑯ 特 願 昭58-99840

⑰ 出 願 昭58(1983)6月4日

⑱ 発明者 大江一英

東京都中央区日本橋一丁目13番
1号ティーディーケイ株式会社
内

⑲ 出 願 人 ティーディーケイ株式会社

東京都中央区日本橋1丁目13番
1号

⑳ 代 理 人 弁理士 石井陽一

明 細 書

1. 発明の名称

電極触媒およびその製造方法

2. 特許請求の範囲

1. 高電性基板上に、ノクノール電解酸化触媒活性を有する被覆層を形成してなる電極触媒において、被覆層が15-60セルの酸化イリジウムを含む白金-酸化イリジウム組成物からなることを特徴とする電極触媒。

2. 酸化イリジウム含有量が、20-55セルである特許請求の範囲第1項に記載の電極触媒。

3. 高電性基板上に、ノクノール電解酸化触媒活性を有する被覆層を形成してなる電極触媒の製造方法において、熱分解によって白金金属となる化合物と、加熱によって酸化イリジウムとなる化合物とを含む混合物を高電性基板上に塗布し、加熱処理を行うことによって、15-60

0セルの酸化イリジウムを含む白金-酸化イリジウム組成物からなる被覆層を形成することとを特徴とする電極触媒の製造方法。

4. 白金-酸化イリジウム組成物中の酸化イリジウム含有量が、20-55セルである特許請求の範囲第3項に記載の電極触媒の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

1 発明の背景

技術分野

本発明は、電極触媒に関するものである。より詳細には、高電性基板上に、ノクノールの電解酸化触媒活性が高く、耐久性のよい被覆層を形成してなるノクノール電解酸化用の電極触媒に関するものである。

先行技術とその問題点

石油質の燃料に酸を添加し、エネルギーの有

効利用が、人類社会の緊急課題となりつつあり、C₁燃料のエネルギー源としての活用が、近年花目を招いている。このC₁燃料の代表的なものとして、メタノールがある。

これは、メタノールが、煤炭、石灰、天然ガスあるいはバイオマス等から大量かつ安価に入手することができると思込まれているからである。

メタノールのエネルギー源としての活用の仕方の一つとして、メタノールの化学エネルギーを、電気化学リアクターにより電気エネルギーに変換しようとする提案がある。

この場合、メタノールの化学エネルギーを電気エネルギーに変換するには、触媒活性を有するアノードを用い、メタノール電解酸化反応をアノード反応とする電気化学リアクター（例えば燃料電池）を構成すればよい。

そして、このとき、エネルギーとしてもっとも良のよい電気エネルギーとして利用でき、また、電力回収が可能となる。また、メタノール

の化学エネルギーを効率よく電気エネルギーに変換すれば、メタノールの炭酸ガスによる電解酸化反応に伴う利用可能なエネルギーは、電気エネルギー換算で、原理的には、メタノール1トンあたり、5000KWh以上となり、エネルギーの有効利用が可能となる。

さらに、電気化学リアクターを介し、化学エネルギーを電気エネルギーへ変換すれば、熱機関によって行われている現在の発電方式と異なり、本質的に、カルノーサイクルによる制限を受けることがないので、原理的に高い熱効率が期待できるものである。

このように、電気化学リアクターを構成して、メタノールの化学エネルギーを工業発電へ有効に利用する試みの一つとして、亜硫酸-亜硫酸過酸溶液からの電解採取へ適用し、電力消費を低減しようとする試みがある。

すなわち、現行の電解法では、アノード反応は40~60℃にて行われる酸素発生反応であり、この反応の標準電極電位は、60℃にて、

3

水素電極基準で1.200Vである。

これに対し、メタノールを電解液中に溶解させ、触媒活性を有するアノードを用いると、アノード反応を、酸素発生反応から、メタノールの炭酸ガスへの酸化反応に置きかえることができる。そして、このCO₂への酸化反応は、60℃にて、水素電極基準で0.034Vである。

すなわち、電解液中にメタノールを溶解させ、所定のアノードを用い、電解槽自体に電気化学リアクターを組みこむことにより、電解槽電圧は、現行法に対し、原理的には、前者の差分の1.166Vを切り下げうる見込みとなる。そして、このとき、電解エネルギー源としては、メタノール1トンあたり、5852KWhの電力エネルギーを原理的に回収できることになる。

さらにまた、電気化学リアクターとして、触媒活性を有するアノードを用い、メタノール-炭酸燃料電池を構成したときには、発電装置と

しても有用であり、他の水素-炭酸燃料電池などととともに、将来の発電装置としても有望である。

ところで、炭酸、電解反応触媒活性を有する物質としては、白金、パラジウム、ルテニウム、ロジウム、イリジウムなどの白金族元素が知られており、これらを基材上に被覆層として設けた電極が、種々の電解反応の電極として用いられている。

しかし、上述のようなメタノール電解酸化用のアノードとしては、白金を被覆層とするのみ、最適なメタノール電解酸化触媒活性を示し、他のパラジウム、ロジウム等はメタノール電解触媒能を示さない。

しかしながら、白金被覆層をもつアノードを用いるときでも、メタノール電解酸化触媒初期には、ある程度高い電解酸化触媒活性を示すものではあるが、未だ十分でなく、また電解時間の経過に伴い、至しい触媒活性の低下をきたしてしまふ。すなわち、得られる電解電流密度

にまだ満足できず、また寿命も短く、実用上満足できる特性がえられない。

このような、電解時に伴う触媒活性の低下は、ノタノールが電解酸化反応の最終生成物である酸素ガスに到る過程で生成すると考えられる酸化中間生成物が、電極面へ吸着堆積することにより、触媒活性が被覆を受けることによるものと推測される。

このような事情から、ノタノールの化学エネルギーを電気エネルギーへ変換する技術を実用にするためには、被覆層形成材料として、高いノタノール電解酸化触媒活性を有し、しかも電解中に触媒の被覆による触媒活性の低下をきたすことのない、長寿命の電極触媒材料の開発が望まれている。

このような実状に鑑み、本発明者らは、先に、白金-ロジウム組成物からなる被覆層についての提案を行っている(特開昭57-158391号)。

この提案によれば、白金被覆層を用いるとき

と比較して、触媒活性が向上し、寿命も格段と向上する。

しかし、ノタノールの酸化のピーク電流が低く、触媒活性能について実用上満足できない。

また、被覆による触媒活性の低下もまだ大きく、実用に耐える寿命がえられない。

このように、実用化するためには、より高活性で、より長寿命の電極触媒の開発が要望されている。

II 発明の目的

本発明は、このような実状に鑑みなされたものであって、実用上十分満足できる高いノタノール電解酸化触媒活性を有し、長時間に亘る電解に耐し、触媒活性の低下がきわめて少なく、実用上十分満足できる寿命をもつノタノール電解用として好適な電極触媒とその製造方法とを提供することを主たる目的とする。

本発明者らは、このような目的につき鋭意研究を行い、種々の材料、特に、白金と白金族な

いし酸化物との組成物のノタノール電解酸化触媒活性およびその被覆特性を測定し、その結果、本発明をなすに至ったものである。

すなわち第1の発明は、

導電性基板上に、ノタノール電解酸化触媒活性を有する被覆層を形成してなる電極触媒において、被覆層が15〜60セル%の酸化イリジウムを含む白金-酸化イリジウム組成物からなることを特徴とする電極触媒である。

また第2の発明は、

導電性基板上に、ノタノール電解酸化触媒活性を有する被覆層を形成してなる電極触媒の製造方法において、熱分解によって白金金属となる化合物と、加熱によって酸化イリジウムとなる化合物とを含む混合物を導電性基板上に塗布し、加熱処理を行うことによって、15〜60セル%の酸化イリジウムを含む白金-酸化イリジウム組成物からなる被覆層を形成することを特徴とする電極触媒の製造方法である。

り、本発明によれば、所定量比の白金-酸化イリジウム組成物を用いることにより、高い触媒活性と、電解時に伴う触媒活性の被覆に対する強い耐性とを具備するものであるが、イリジウム酸化物を他の白金族元素、例えばルテニウム、ロジウム等の金属ないし酸化物に代えたときには、このような効果は実現しない。このような事実、後記実施例からも明白となるであろう。

III 発明の具体的構成

以下、本発明の具体的構成について詳細に説明する。

本発明における被覆層は、15セル%〜60セル%、より好ましくは20セル%〜55セル%の酸化イリジウムを含む白金-酸化イリジウム組成物から形成される。

この場合、酸化イリジウム量が、15セル%未満、および60セル%より大となると、ノタノールの酸化のピーク電流が小さくなり、触媒

活性の点で実用に耐えない。また、被覆に対する耐性が弱くなり、電解電流密度の経時劣化が大きくなる。

被覆層は、白金-酸化イリジウム組成物のみから実質的に形成すればよい。

そして、この被覆層を形成する白金-酸化イリジウム組成物は、後述の導電性基材上に設けられた組成物中に、白金が金属として、またイリジウムが酸化物(IrO_2)として存在しているものである。

なお、被覆層の厚さとしては、特に制限はないが、通常 $0.2 \sim 2.0 \mu\text{m}$ 、特に $0.5 \sim 5 \mu\text{m}$ 程度とされる。

一方、基材としての導電性基材としては、その材質に特に制限はなく、種々の金属を用いることができる。

ただ、前述した電解槽中での電極の電解採取にアノードとして適用する場合のように、酸性電解槽中でのアノードとして用いる場合には、不溶性アノードとして十分な耐食性をもたせる

ために、アノード条件下でその表面に緻密な耐食性被覆を形成することが知られている、いわゆる貴金属を導電性基材として用いることが好ましい。

このような貴金属としては、その代表例として、チタンおよびチタン合金が知られているが、他に、タンタル、ジルコニウム、ニオブおよびこれらの合金も同様に用いることができる。

また、本発明における、白金-酸化イリジウム組成物被覆層は、例えば、苛性カリ水溶液のようなアルカリ性の電解液中においても、酸性電解液中と同様の、さわめて高いメタノール電解酸化触媒活性および電解経時に伴う触媒活性の被覆に対する強い耐性を有するものである。

そして、例えば、苛性カリ水溶液を電解液とする、メタノール空気燃料電池のメタノール電解用アノードとして用いると、実装検討されてきた電極を用いる場合に比べて優れた放電特性が得られ、実用化への大いなる寄与が期待さ

11

れるものである。

このような、アルカリ性の電解液中での用途に供する場合には、導電性基材として、例えばチタンのような貴金属の酸化被覆は、電解液に対する溶解性が大きいので実用には適さなくなり、例えばニッケルのような、アルカリ性電解液に対し不溶性の被覆を形成する金属を用いることが好ましい。

このように導電性基材上に、所定の白金-酸化イリジウム組成物からなる被覆層を有する本発明の電極触媒の形状、寸法には制限はなく、使用用途に応じたものとすればよい。

このような本発明のメタノール電解用の電極触媒を製造するにあたり、導電性基材上に被覆層を形成するには、公知の種々の方法によることができる。

これら種々の方法のうち、被覆層の形成は、いわゆる熱分解法によることが好ましい。

すなわち、例えば、まず、チタン等を電極とし、これに熱分解によって白金金属となる

化合物、例えば塩化白金酸($\text{H}_2\text{PtCl}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)や硝酸白金、

および、加熱酸化によって酸化イリジウム金属となる化合物、例えば、塩化イリジウム($\text{IrCl}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$)、塩化イリジウム酸($\text{H}_2\text{IrCl}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)や硝酸イリジウム等のそれぞれ所定量を溶解して、塩溶液を調製する。

次いで、これを導電性基材の表面に、例えば刷毛塗り、投射等によって施し、乾燥後、酸素含有雰囲気中で加熱処理して、被覆層成分の熱分解および酸化反応生成物として、白金-酸化イリジウム組成物の被覆層を基材上に設けられることができる。

このような方法によれば、後述の実施例にて示されるように、さわめて優れた性能を有するメタノール電解酸化用の電極触媒を得ることができる。

なお、このような熱分解法により本発明の電極を製造する場合、実用上十分に堅牢で、かつ

13

14

長期間の使用にわたり、安定した性能を維持する電極となすために、上記の酸液-加熱処理の工程を複数回繰り返すことがより好ましい。特に、これを5-10回繰り返したとき、十分に好ましい結果が得られている。

また、焼き付けは、酸素分圧が0.1-0.5気圧の範囲にある気体雰囲気中で、200-800°Cの最適温度にて、5-10分間加熱して行うことができる。

さらに、酸液の酸種としては、水、エタノール、ブタノール等がよい。

酸液の濃度は、粘度、酸液のしよさ、酸液の蒸気等を考慮して、全固換算で、0.01-10 g/ml、特に、全固換算で、0.02-2 g/mlとするのが好ましい。また、酸液中には、ラベンダー油、テレピン油等の酸液性改良剤を含有させることができる。

なお、導電性基材には、予め表面酸化処理や表面処理等の前処理を施し、これに前記のように被覆膜を形成することもできる。

15

集するところはきわめて大なるものである。

さらには、本発明の電極触媒は、酸素発生に對しても、低い酸素過電圧をもつため、電力効率がすぐれ、耐久性がすぐれているという特長がある。

一般的に、燃料極においては、一定の使用期間ごとに、電位を上昇させて酸素を発生させ、この発生酸素のバブルで被覆膜を除去する活性化法が知られている。

この場合、例えば硫酸水溶液で活性化、すなわち酸素発生を行う場合には、耐久性が特に要求され、これを満足する電極触媒は少ない。

本発明の電極触媒は、この活性化処理後も、被覆膜の損傷がきわめて少なく、活性化処理後の電位傾は一定値となり、従来の白金ないし白金組成物被覆膜と比較して、きわめて有利な特長をもつ。

おえて、酸素過電圧もきわめて低い。

本発明の電極触媒は、白金被覆膜にくらべて、酸素過電圧が0.3-0.4V低いので、

IV 発明の具体的作用効果

本発明のメタノール電解用の電極触媒は、メタノールの電解酸化を行うアノードとして用いられ、有用である。

すなわち、電解液が酸性であっても、またアルカリ性であっても、きわめて高いメタノール電解酸化触媒活性を示し、高いメタノールの酸化ピーク電位密度を得ることができる。

そして、電解時に伴う触媒活性の減退はきわめて少なく、長期間にわたって高い電位密度を示す。この場合、従来の白金ないし白金組成物からなる被覆膜と比較して、寿命は10倍以上向上する。

このため、前述したように、亜鉛の電解採取に對して、硫酸-硫酸亜鉛電解液にメタノールを数モル/l添加し、例えば40-60°Cにて数A/dm²程度のレートで電解を行う際のアノードとして、あるいは前述したところのメタノール-酸素燃料電池等のアノードとして、きわめて良好な特性を示し、エネルギーの有効利用に

16

現行の亜鉛触媒の酸のアノードとして使用した場合、低い電圧で選取が可能となる。

一方、メタノールをくみあわせて亜鉛触媒のアノードとして使用した場合、上述のように、きわめて高い効率および耐久性を示す。

このことから、亜鉛触媒に關して、安い深夜電力を利用して現行法で選取し、日中はメタノール触媒による選取をし、トータルで電力コストの低減をはかることも本発明の電極触媒の使用により可能である。

また、メタノール酸化能と酸素還元能は同一であるといわれており、白金族の中でも白金のみが活性であるので、本発明の電極触媒は、酸素還元触媒としてもすぐれていると予想される。

このことから、酸素発生用アノードとしてのすぐれた特性をいかして、H₂-O₂燃料電池およびH₂O電解槽による電力貯蔵システムであるウォーター バッテリー (water battery) への適用の可能性もある。

17

18

このように本発明の電極触媒は、バイファンクショナルアノード(bifunctional anode)として機能する特長がある。

V 発明の具体的実施例

以下、本発明の具体的実施例を掲げ、本発明をさらに詳細に説明する。

実施例

塩化白金酸($\text{H}_2\text{PtCl}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)

および塩化イリジウム酸($\text{H}_2\text{IrCl}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)を、ブタノールに溶解させ、全金属含有量が、金属換算で0.1 g/mlで、白金が70モル%、イリジウムが30モル%の仕込み組成とした。塗布液を作製した(以下A液とよぶ)。

また、これとは別に、A液と同様の方法で、全金属含有量が0.1 g/mlで、イリジウムが5、10、15、20、25、35、40、50、70、80モル%のもの計10種を

作製した。

さらに比較のため、塩化イリジウム酸を塩化ロジウム($\text{RhCl}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$)にかえ、全金属含有量が、0.1 g/mlで、白金70モル%、ロジウムが1.5モル%のもの(以下B液とよぶ)。

全金属含有量0.1 g/mlの、白金単体のもの(以下C液とよぶ)。

および、全金属含有量が、0.1 g/mlで、イリジウム単体のものを作製した。

次に、これら各塗布液を、市販のトリクレン酸樹脂にて樹脂被、沸騰した10%シュウ酸水溶液にて300分表面処理した。チタン板基材(200φ)に銅毛にて塗布し、乾燥後、焼成した。

塗布、焼成は、10回同様に繰り返し行い、加熱処理は、塗布液に各10分間、500で、空気中にて行った。なお、塗布液Bでは、塗布液中に還元剤を含有させて、加熱温度を400とした。

19

このようにして、計13種の塗布液を用い、13種の電極を作製した。これら13種の電極の被覆層厚は、ともに2μmであった。

各電極に施した白金組成物被覆層につき、X線分析を行ったところ、Ptと、Irのピークがみとめられた。この場合、Ptの中に少量のIrが固溶している可能性があるが、Ptのピークのシフトは、ほとんどなく、たとえ固溶しているとしてもきわめて少量であると推定される。

これに対し、電極Bでは、Rh単体に帰属するピークは認められず、また、Ptに帰属するピークはRh側にシフトしており、これから、RhがPt中に固溶されているものであると推定された。

また、各被覆層につき蛍光X線分析を行ったところ、いずれも分析装置内で、仕込み組成と一致する組成をもつことが確認された。

次に、これら各電極に、テフロン熱収縮チューブを被覆し、被覆層を所定同一面積だけ露出

20

させ、各アノード試料とした。

次いで、これら各アノードを用い、各電極の触媒活性と、その被覆層性を評価した。

すなわち、電解液としては、1モル/lの H_2SO_4 と1モル/lのメタノールとを含む水溶液を用い、アノードと白金電極からなるカソードを配置した。電解液は、恒電流中にて温度計で温度を監視しながら、50で保持した。そして、電解液中には H_2 バブルを生成し、液中の溶解酸素を排除できるようにし、かつスクーラーによって攪拌した。

他方、電解液は、ブリックを介し、25で、1モル/lの H_2SO_4 水溶液中に配置した白金電極(NHE)と接続した。

このような装置を用い、各電極につき、0.1 V/secにて、アノード走査でのサイクリックボルタングラムを測定した。被覆層A、B、Cの結果を第1図に示す。

また、メタノールの酸化ピークでのピーク電位 E_p (V/NHE)と、白金-酸化イリジウ

組成物中の酸化イリジウム含有量との関係を第2図に示す。

さらに、アノード電位を水素電極基準で0.6Vに設定して、電解開始後の経時に行う電解電流密度の変化を測定した。結果を第3図に示す。図中、記号A、B、Cは、用いた電極番号を示している。

これらの結果から、Ir 15～50モル%の $\text{Pt}-\text{IrO}_2$ 組成物からなる本発明の電極材料が、さきめて高いメタノールの酸化ピーク電流密度をもち、他の被覆層と比較して10倍以上の寿命をもつことがわかる。

なお、上記の各電極において、Irをメタルの形で含有させた組成物およびRhを酸化物の形で含有させたものでは、Rhをメタルの形で含有する電極Bとはほぼ同じ結果であった。

これらから、Irを IrO_2 の形で含有させないかぎり、高活性、長寿命の電極材料は実現しないという、当初まったく予測できなかった結果が実現していることがわかる。

4. 図面の簡単な説明

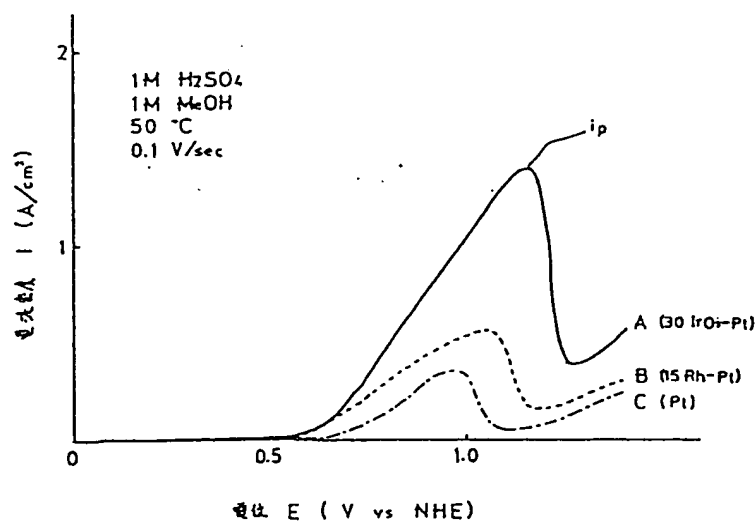
第1図～第3図は、本発明の効果を説明するための図であり、このうち第1図が、アノード走査でのサイクリックボルタングラムであり、第2図が、アノード走査でのサイクリックボルタングラムのメタノールの酸化ピーク電流密度 i_p と、白金-酸化イリジウム組成物中の酸化イリジウム含有量との関係を示すグラフであり、第3図が、電解電流密度の経時変化を示すグラフである。

出願人 ティーディーケイ株式会社
代理人 弁理士 石 井 陽 一

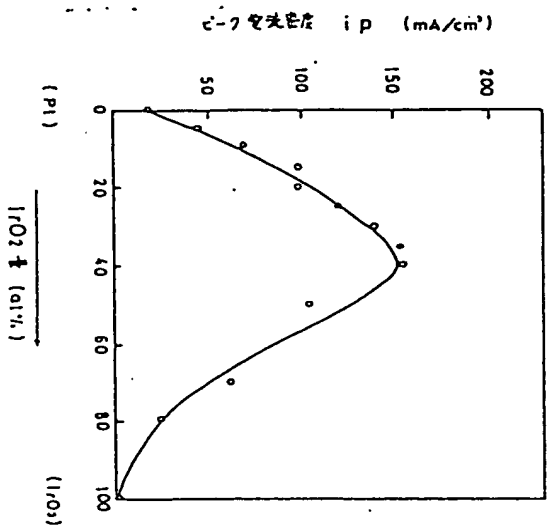
23

24

第 1 図



第 2 図



第 3 図

